保健医療科学　2010　Vol.59 No.2 p.109－115

特集：平常時・災害時の衛生対策

＜原著＞

モノクロラミン消毒による浴槽レジオネラ属菌の衛生対策

杉山寛治[1)]，小坂浩司[2)]，泉山信司[3)]，縣邦雄[4)]，遠藤卓郎[5)]

[1)] 静岡県環境衛生科学研究所微生物部
[2)] 国立保健医療科学院水道工学部
[3)] 国立感染症研究所寄生動物部
[4)] アクアス株式会社つくば総合研究所
[5)] 国立感染症研究所細菌第一部

Sanitary Control of Bathing Water with Monochloramine Disinfection: Prevention of Legionella Contamination

Kanji SUGIYAMA[1)] , Koji KOSAKA[2)] , Shinji IZUMIYAMA[3)] , Kunio AGATA[4)] , Takuro ENDO[5)]

[1)] Department of Microbiology, Shizuoka Institute of Environment and Hygiene
[2)] Department of Water Supply Engineering, National Institute of Public Health
[3)] Department of Parasitology, National Institute of Infectious Diseases
[4)] Tsukuba Research Laboratories, Aquas Corporation
[5)] Department of Microbiology, National Institute of Infectious Diseases

抄録

目的　循環式浴槽では肺炎の起因菌であるレジオネラ属菌の汚染が問題となっている．死亡例を含む集団感染が繰り返されたことから，厚生労働省（当時は厚生省）の指導のもとで緊急避難的に遊離塩素消毒による管理が行われ，そのまま平常時の対応となった感がある．しかしながら，今日に至るまで浴槽からレジオネラが検出されており，遊離塩素消毒が全ての浴槽の安全を担保するとは言い難い状況にある．井水や温泉水など多様な水質（泉質）が存在し，また薬湯では添加された薬物成分と塩素が反応したり，高 pH の条件下では遊離塩素の効果が減じたりしているものと考えられる．また臭気などが敬遠されて塩素の使用が必ずしも徹底されない恐れもあり，多方面から代替消毒方法が求められている．本研究では米国の水道で実用化されているモノクロラミン消毒（結合塩素の１種）に着目し，モノクロラミン消毒の浴用施設への応用について検討を行った．

方法　モデル循環式浴槽を用い，２週間にわたってモノクロラミン消毒下で入浴を行い，この間のレジオネラ属菌や塩素濃度を測定した．モノクロラミン溶液は，アルカリ性（pH8.4）条件下の井水 1L に次亜塩素酸ナトリウム溶液加え，次いで塩化アンモニウム水溶液を添加・混合することで生成した．生成したモノクロラミンをモデル循環式浴槽に加え，その後は不足した塩素を１日１回程度追加し，濃度維持（3mg/L）に努めた．塩素濃度は DPD 吸光度法（全塩素（結合塩素と遊離塩素の和），あるいは遊離塩素），インドフェノール法（モノクロラミン），DPD/FAS 滴定法（遊離塩素，モノクロラミン，ジクロラミン，トリクロラミン），サリチル酸法（モノクロラミン），および HS-GC/MS 法（トリクロラミン）の各種方法により測定した．

結果　２週間の消毒管理期間中，レジオネラ属菌とアメーバは検出されなかった．同時に測定した従属栄養細菌数も低く，微生物の増殖は抑えられていた．DPD 吸光度法（全塩素）は，他の複数のモノクロラミン測定方法と同等の測定値が得られたことから，DPD 吸光度法による全塩素濃度はモノクロラミン濃度に相当するものと判断され，現場向きの測定法として利用が可能であった．DPD/FAS 滴定法では，ジクロラミンがわずかに検出された程度にとどまり，塩素臭の主要な原因

〒 162-8640 東京都新宿区戸山 1-23-1　　国立感染症研究所寄生動物部
1-23-1, Toyama, Shinjyuku-ku, Tokyo, 162-8640, Japan.
Tel:+81-3-5285-1111 Fax:+81-3-5285-1173
izmym@nih.go.jp
[平成 22 年 6 月 16 日受理]

となるトリクロラミンは検出されなかった．高感度な HS-GC/MS 法による測定においても，トリクロラミンは検出されなかった．なお，ボランティア入浴者から，いわゆる塩素臭がほとんどなかったとの感想を得ており，モノクロラミンによる消毒では臭気の低減が期待できた．

結論　浴槽における遊離塩素消毒の代替法として，モノクロラミン消毒が有効であることを見出した．

キーワード：レジオネラ，浴槽，モノクロラミン，消毒，塩素

Abstract

Objectives Microbiological contamination of whirlpool baths with Legionella, a causative agent of pneumonia, is an important issue in Japan. The Chlorination of such bath water has been required during emergencies following several outbreaks of legionellosis, and chlorination has been established as the usual measure until now. However, chlorination has some difficulty in maintaining the cleanliness of bath water, and detections of Legionella are being reported even now. Chlorine in bath water sometimes reacts with substances that occur naturally in or are added to hot or cold springs or wells. Residual active chlorine (hypochlorous acid) also decreases under the condition of high pH. Strict maintenance of adequate chlorination levels is also unpopular with guests at facilities due to the strong odor of chlorination (the odor likely comes from trichloramine). An alternative measure is demanded to avoid those problems. In this study, we focused on monochloramine disinfection as an alternative measure, which is applied for municipal drinking water in the USA in order to prevent biofilms and disinfection by-products. We applied monochloramine disinfection to a whirlpool bath model running in our laboratory.

Methods Monochloramine concentration was maintained at around 3 mg/L while volunteers took baths in the whirlpool bath for 2 weeks. A monochloramine solution was added to the bath water immediately after it was made by mixing diluted sodium hypochlorite and ammonium chloride in a beaker of well water (pH 8.4). Amoebae, Legionella and heterotrophic bacteria were monitored during the test by using the usual culture methods. Chlorine concentrations were measured by the *N,N*-diethyl-*p*-phenylenediamine (DPD) ferrous titrimetric and colorimetric methods, the indophenol method, the salicylate method, and the HS-GC/MS method.

Results Microbiological contamination was suppressed successfully in the bath during the two-week period, by daily disinfection using monochloramine. *Legionella* and/or host amoebae were not detected, and heterotrophic plate counts were zero or very low. The DPD titrimetric method, the DPD colorimetric method, the indophenol method, and the salicylate method all produced almost the same measurements of the bath water, so the measurements of total residual chlorine (free chlorine plus combined chlorine) could be considered as the monochloramine concentrations. A small amount of dichloramine was detected with the DPD titrimetric method but no trichloramine was detected. This absence of trichloramine was confirmed by using the sensitive HS-GC/MS method, and volunteers noticed little odor during bathing, which provides additional evidence supporting the idea regarding the odor mentioned above. This monochloramine disinfection was successful in suppressing the typical chlorine odor.

Conclusions We found monochloramine disinfection to be very recommendable as a measure for the sanitary control and the prevention of Legionella contamination in alkaline bath water.

Keywords: Legionella, bath, monochloramine, disinfection, chlorine

Ⅰ．緒言

重篤なレジオネラ肺炎の起因菌であるレジオネラ属菌は，アメーバ等の原生動物に感染し増殖するが，浴槽水など身の回りの温水環境を介して人に感染することから問題となる．浴槽水の長期連用と管理の簡略化（自動化）に導入された循環式浴槽は，その構造上から入浴者の持ち込む汚れの蓄積は免れず，その結果，浴槽内で微生物の繁殖，ひいてはレジオネラ等の病原微生物汚染につながっている．事実，2002 年には 7 名の死亡を含む 295 名の大規模集団感染が発生し，その他にも集団感染が繰り返されている[1, 2]．この間，厚生労働省（当時は厚生省）の指導により浴槽水の遊離塩素消毒が行なわれてきたが，当初の消毒方法がそのまま平常時の対応として今日に至っている（公衆浴場における衛生等管理要領等について，生衛発第 1811 号平成 12 年 12 月 15 日、健発第 0214004 号平成 15 年 2 月 14 日改正）．

遊離塩素の消毒効果は条件によって著しく減ずる可能性があり，そのため遊離塩素消毒下にもかかわらずしばしばレジオネラ属菌が検出されている[3]．換言すれば，遊離塩素消毒は全ての浴用施設の安全を担保するものになってはいない．遊離塩素を消費する物質として金属イオン，有機物，あるいはアンモニアなど数多くが知られている．また，高 pH 環境下で消毒効果が著しく減じる点も問題である．塩素（Cl_2）は水に溶けると加水分解して塩酸と次亜塩素酸（HClO）に分かれ，水中では通常 HClO と

その共役塩基である次亜塩素酸イオン（ClO^-）として存在している[4]．したがって，遊離塩素消毒とは，実際には，HClO と ClO^- による消毒を意味しているが，高 pH 環境下では次亜塩素酸イオンが優位となり消毒効果が低下する（pKa=7.5）．本来，遊離残留塩素による水の消毒は不連続点塩素処理（不連続点を超えて塩素を注入する処理方法）を基本とするが，浴用水では，上述の物質さらには入浴者の体表で遊離塩素が消費されることから，不連続点処理はおろか，遊離塩素濃度の維持も難しい．これらの問題を解消するためには遊離塩素消毒の代替消毒法が求められる．

本研究では，浴槽における代替消毒方法としてモノクロラミン消毒に着目した．モノクロラミンは結合塩素の 1 種で，遊離塩素消毒に比べて遅効性ではあるが，化学的安定性があることから使いやすい可能性がある．実際に米国の水道では配管系のバイオフィルム対策および消毒副生成物対策として 2005 年の報告時点で 3 割の施設にモノクロラミン消毒が取り入れられている実績があり[5]，また，給湯配管のレジオネラ対策には遊離塩素消毒に比べてモノクロラミン消毒がより有効であるとの報告がある[6]．わが国の水道でも結合残留塩素による消毒は 0.4mg/L 以上，著しく汚染される恐れがある場合 1.5mg/L 以上と規定されている（水道法第 22 条に基づく水道法施行規則第 17 条第 1 項第 3 号）．ここで言う結合残留塩素は主にモノクロラミンと想定される．モノクロラミンを入浴中に使用した場合は皮膚への刺激性等が心配されるが，実験動物を用いた試験結果では問題ないことが確認された[7]．

浴槽レジオネラ対策としてのモノクロラミン消毒の有効性を検討した報告は見当たらず，本研究において検討を試みた．最初に，浴槽水中のモノクロラミン濃度の維持管理が必要となるが，高い安定性を生かして 1 日 1 回程度の添加で足りるのであれば現場での使用には好都合である．また，現場向きのモノクロラミン測定方法が必要である．臭気の原因となるジクロラミンと，主要な原因となるトリクロラミンの生成をできる限り抑制したいが，反応条件としてアルカリ性であること，アンモニア過剰であることが必須と考えられる．入浴により浴槽水は有機物汚染を受けるが，これに伴い消毒効果が低下する有機クロラミンの副生と微生物の増殖が懸念される．これらの一連の検証を，試験管内試験ではない，実際の浴槽施設とほぼ同じと見なせるモデル循環式浴槽において実施したので報告する．

Ⅱ．材料と方法

1. モノクロラミン

モノクロラミンはアルカリ条件下，次亜塩素酸ナトリウムとアンモニアの反応によって得られ（$NH_3 + HClO \rightarrow NH_2Cl + H_2O$），溶液は用時調製が必要である．アンモニアの不足や pH が酸性側に傾くと，モノクロラミンからジクロラミン（$NH_2Cl + HOCl \rightarrow NHCl_2 + H_2O$），トリクロラミン（$NHCl_2 + HOCl \rightarrow NCl_3 + H_2O$）が生成する恐れがあるので注意を要する．また有機物との反応による有機クロラミンの生成にも注意を払う必要がある．本研究では，井水 1L（pH8.4）に，6% 次亜塩素酸ナトリウム溶液（オーヤラックス）90ml を添加・希釈し，次いで 10％塩化アンモニウム溶液（和光純薬）112.5ml を加え，所定の時間反応させてモノクロラミンを生成した．この時の両剤のモル比は遊離塩素に対してアンモニアが過剰（1:2.5）となっており，ジクロラミンおよびトリクロラミン生成の抑制に努めた．この全量を水量 $2m^3$ のモデル循環式浴槽に添加，浴槽水のモノクロラミン濃度を 3mg/L 付近に調整した．濃度は WHO のバックグランドドキュメント等を参考に設定した[8]．

2. モデル循環式浴槽

モデル循環式浴槽（静岡県環境衛生科学研究所）は，砂ろ過装置を含む循環配管と浴槽や加温装置からなり，水量は循環系を含め $2m^3$ ある．これを最初に洗浄消毒し，pH8.4 の井水を満たしてからモノクロラミン消毒を開始した．循環流速を $4m^3/h$ とし，湯温 40℃に維持した浴槽水に研究所職員が入浴することで有機物汚染を負荷した．モノクロラミンの消費分は計測の上で間欠的に投入・補完し，2 週間の入浴実験を行なった．この間，定期的に試料を採取し，常法に従ってレジオネラ属菌（GVPC 寒天培地），従属栄養細菌（R2A 寒天培地），自由生活性アメーバ（大腸菌塗布無栄養寒天培地）を定量した．

本浴槽では消毒がなくなると速やかにレジオネラ属菌を含め各種微生物が増殖することを繰り返しており，安全性には十分に配慮して入浴試験を行った．浴槽上部の天井にはドラフトを設置し，換気によるエアロゾル対策に努めた．併せて入浴者による浴槽水の臭気について聞き取り調査を行った．上記の一連の入浴試験を 2 回実施した．

3. 塩素濃度測定

モデル浴槽現場での全残留塩素濃度（遊離残留塩素濃度と結合残留塩素濃度の和）ならびに遊離残留塩素濃度は *N,N*- ジエチル -*p*- フェニレンジアミン（DPD）吸光度法により測定した（ポケット塩素計，全塩素用ならびに遊離塩素用測定試薬；HACH 社）．予備実験の結果から，上述の方法で生成されたクロラミン溶液には遊離残留塩素は検出されず，全てが結合型塩素として存在しており，また，そのほとんど全てがモノクロラミンであることを確認した．すなわち，全塩素濃度の測定値をモノクロラミン濃度と考えてよく，現場におけるモノクロラミン濃度は，DPD 吸光度法による全塩素濃度の測定値を用いた．なお，2 回目のモデル浴槽試験では簡易測定試薬（Monochlor F, HACH 社）を用いたインドフェノール法によるモノクロラミン濃度測定もあわせて行った[9]．インドフェノール法は，有機クロラミン等の影響を受けにくい測定方法であることが知られている．

モノクロラミン・ジクロラミン・トリクロラミンの分別定量は，米国の Standard Methods（第 21 版，2005）の DPD を用いた硫酸第一鉄アンモニウム（FAS）によ

る滴定法（DPD/FAS 滴定法）に準じて行った[10]．なお，DPD/FAS 滴定法と区別する目的で，本報告では先に説明した現場使用の簡易試験法を DPD 吸光度法と表現した．

DPD 吸光度法ならびに DPD/FAS 滴定法は，有機クロラミンが存在する場合にはその影響を受ける場合がある．これを避けるため，インドフェノール法と同様に有機クロラミン等の影響を受けにくいサリチル酸法での測定を併用した[11]．DPD 法とサリチル酸法あるいはインドフェノール法による測定値を比較することで，有機クロラミンの生成の有無を確認した．

トリクロラミンの濃度測定は，HS-GC/MS 法（ヘッドスペース-ガスクロマトグラフ質量分析法，Agilent 6890N/5975C，Agilent Technologies 社）を併用した[12, 13]．なお，HS-GC/MS 法の定量下限値は 15 μg/L で，DPD/FAS 滴定法よりも高感度にトリクロラミンを測定できる．

現場で実施できない DPD/FAS 滴定法，HS-GC/MS 法，サリチル酸法による塩素濃度の測定ついては，消毒副生成物等の測定方法に準じて浴槽水を輸送し，実験室（国立医療科学院）で実施した．すなわち，化学測定用の共栓ビンを用い，空気を入れないよう試料水で容器を満たし，パラフィルムで封じて冷蔵して輸送した．

Ⅲ．結果および考察

1. モノクロラミンによるモデル循環式浴槽のレジオネラ消毒効果

方法に記したように，2m^{3}のモデル循環式浴槽水のモノクロラミン消毒による管理を試みた．モノクロラミン濃度 3mg/L を目標に管理して，入浴しながら 2 週間にわたって浴槽水を使用し続けた．レジオネラ属菌，自由生活性アメーバ，従属栄養細菌の測定を行った結果，レジオネラ属菌，自由生活性アメーバは検出されなかった（表 1）．従属栄養細菌は検出されてもわずかであった．モノクロラミン消毒は微生物汚染を抑制することが可能であった．

また，モノクロラミン消毒を停止した浴槽水において，レジオネラ属菌，従属栄養細菌，アメーバの増殖が確認された．これは当浴槽水に細菌増殖のポテンシャルがあったことを意味し，モノクロラミン消毒によってそれが抑えられていたことになる．モノクロラミンの消毒効果の高さが示唆される結果であった．

2. モデル循環式浴槽におけるモノクロラミン濃度の維持

モノクロラミンを含む塩素とアンモニアの反応は非常に複雑である[4]．このため，モノクロラミンを高純度で生成させるには，アルカリ条件下で，遊離塩素に対してアンモニアを過剰に保ちつつ反応させることが重要となる．現場での簡易なモノクロラミン溶液の生成方法として，方法に記した手順を用意した．この方法を用いることで，浴槽水の全塩素濃度（モノクロラミン濃度）を所定の濃度（≒3mg/L）に調整することが可能であった（表 2）．入浴後の浴槽水中のモノクロラミン濃度は概ね 1 ～ 3 割（最大 5 割）低下することから，それに応じて 1 日 1 回，モノクロラミン溶液を追加することで比較的容易に濃度を維持することができた．モノクロラミン溶液の調製と浴槽中での濃度維持は遊離塩素管理に比べて容易と考えられたが，実施に向けては塩素試薬の安全操作，生成反応や塩素濃度測定とそれに応じた追加塩素量の計算への理解が必要になる．入浴施設など現場への導入およびその普及，あるいは事故防止の観点からは自動注入装置の開発が好ましいと考える．

3. モノクロラミン，ジクロラミン，トリクロラミン測定

DPD/FAS 滴定法によりモノ・ジ・トリクロラミン濃度をそれぞれ測定した結果，わずかな量（0.1mg/L）のジクロラミン生成が認められた以外は全てモノクロラミンであった（表 3）．本方法ではトリクロラミンが測定されることは無く，さらに，高感度の HS-GC/MS 法によってもトリクロラミンは生成されていないことが確認された（定量下限値：15 μg/L）．トリクロラミンは主要な塩素臭の原因物質であるが，トリクロラミンが不検出という測定結果と，入浴を担当したボランティアから得た「試験期間を通して塩素臭はほとんどなかった」との証言は符合した．

なお，DPD 吸光度法による全塩素濃度の値はインドフ

表 1　浴槽水の微生物汚染測定結果

A) 1回目

管理状態	日数	レジオネラ属菌数(CFU/100mL)	従属栄養細菌数（CFU/mL）	アメーバ数（50mL中）
濃度管理入浴前		＜10	＜10	0
濃度管理入浴	1日目	＜10	＜10	0
	2日目	＜10	＜10	0
	3日目	＜10	＜10	0
	5日目	＜10	＜10	0
	8日目	＜10	＜10	0
	10日目	＜10	＜10	0
	12日目	＜10	＜10	0
	15日目	＜10	＜10	0
濃度管理なし	44日後	2.2×10^4	2.5×10^5	検出

B) 2回目

管理状態	日数	レジオネラ属菌数(CFU/100mL)	従属栄養細菌数（CFU/mL）	アメーバ数（50mL中）
濃度管理入浴前		＜10	＜10	0
濃度管理入浴	1日目	＜10	＜10	0
	3日目	＜10	＜10	0
	7日目	＜10	＜10	0
	11日目	＜10	20	0
	14日目	＜10	10	0
濃度管理なし	15日後	7.5×10^2	3.1×10^5	9.5

表２　モデル循環式浴槽塩素濃度推移

A) 1回目

管理状態	日数	塩素濃度（mg/L）*3 全塩素*1	塩素濃度（mg/L）*3 遊離塩素*1	モノクロラミン投入量（mg/L）*2	入浴者数
モノクロラミン投入前		0.1	0.0		0
濃度一定調整時		3.3	0.1	3.0	0
濃度管理	1日後	2.8	0.1	0.4	0
	2日後	2.7	0.2	0.4	0
濃度管理入浴	1日目	2.6	0.1	0.7	1
	2日目	2.5	0.2	0.6	2
	3日目	2.3	0.1	1.2	3
	4日目	2.6	0.1	1.0	1
	5日目	2.8	0.2	0.8	3
	6日目	2.6	0.2	0.8	1
	7日目	3.0	0.1	0.3	0
	8日目	2.2	0.1	0.8	3
	9日目	2.7	0.1	1.4	3
	10日目	2.7	0.1	1.0	2
	11日目	3.1	0.1	0.6	2
	12日目	2.6	0.2	1.0	3
	13日目	3.1	0.1	0.4	1
	14日目	2.4	0.2	0.8	0
	15日目	3.1	0.1	0	0
濃度管理なし	1日後	1.8	0.1	0	0
	2日後	1.4	0.1	0	0
	3日後	1.1	0.1	0	0

B) 2回目

管理状態	日数	塩素濃度（mg/L）*3 モノクロラミン*4	塩素濃度（mg/L）*3 全塩素*1	塩素濃度（mg/L）*3 遊離塩素*1	モノクロラミン投入量（mg/L）*2	入浴者数
モノクロラミン投入前		0.1	0.3	0.0		0
濃度一定調整時		3.0	3.0	0.1	3.6	0
濃度管理	1日後	2.6	2.6	0.1	0.9	0
	2日後	2.5	2.5	0.1	1.0	0
	3日後	2.5	2.5	0.2	0.6	0
濃度管理入浴	1日目	2.3	2.6	0.1	1.6	1
	2日目	2.6	3.0	0.2	1.0	1
	3日目	2.6	2.6	0.1	1.2	3
	4日目	2.7	2.7	0.1	1.0	3
	5日目	2.5	2.7	0.1	1.0	1
	6日目	2.7	2.7	0.1	0.8	1
	7日目	2.6	2.7	0.1	1.2	3
	8日目	2.8	2.6	0.1	0.8	2
	9日目	2.6	2.7	0.1	0.8	1
	10日目	2.4	2.5	0.1	1.2	2
	11日目	2.7	2.6	0.1	1.0	2
	12日目	2.4	2.6	0.1	0.8	1
	13日目	2.3	2.5	0.1	0.8	1
	14日目	2.4	2.5	0.1	0	0
濃度管理なし	1日後	1.7	1.7	0.1	0	0
	2日後	1.0	1.9	0.1	0	0
	3日後	0.7	0.9	0.1	0	0
	4日後	0.4	0.5	0.0	0	0
	5日後	0.3	0.4	0.0	0	0
	8日後	0.1	0.4	0.0	0	0
	9日後	0.1	0.2	0.0	0	0
	10日後	0.0	0.0	0.0	0	0
	11日後	0.0	0.3	0.0	0	0
	15日後	0.1	0.0	0.0	0	0

*1 全塩素濃度、遊離塩素濃度はDPD吸光度法実測値
*2 モノクロラミン投入量は計算値
*3 塩素濃度は、モノクロラミン投入後の測定値
*4 モノクロラミン濃度はインドフェノール法実測値

表３　各種塩素の分別定量

試験 試料内容	DPD/FAS滴定法 モノ	ジ	トリ	遊離塩素	サリチル酸法 モノ	HS-GC/MS法 トリ	DPD法*3 全塩素	インドフェノール法*3 モノ
第一回入浴試験								
最初、モノクロラミン管理入浴0日入浴前*1	2.4	0.1	不検出	不検出	2.5	不検出	2.6	ND
最初、モノクロラミン管理入浴0日入浴前	2.5	0.1	不検出	不検出	2.5	不検出	2.6	ND
途中、モノクロラミン管理入浴4日目	2.6	0.1	不検出	不検出	2.6	不検出	2.6	ND
最終、モノクロラミン管理入浴15日目	2.3	0.1	不検出	不検出	2.3	不検出	3.1	ND
第二回入浴試験								
最終、モノクロラミン管理入浴14日目*2	2.4	不検出	不検出	不検出	2.2	不検出	2.5	2.4

*1：新幹線にて輸送し当日測定した。他は宅配便にて輸送し到着日に測定（冷蔵保存1日相当）
*2：宅配便輸送に要した時間を含め、冷蔵保存2日後に測定
*3：比較用に現場測定値を再掲、他は輸送してモデル浴槽とは別の施設において測定
ND：no data

ェノール法によって測定されたモノクロラミン濃度とほぼ一致しており，DPD 吸光度法により測定された全塩素濃度をモノクロラミン濃度としてよいものと判断された（表 2B）．なお，DPD 吸光度法では微量の遊離塩素が測定されたが，常にアンモニア過剰の条件でモノクロラミン生成を行なっており，理論上遊離塩素の存在は考えにくい．DPD 吸光度法の取扱説明書は遊離塩素濃度を測定する際に迅速な操作を求めており，結合塩素が存在する場合には時間の経過とともに発色が進むことから，そのような誤差として上記遊離塩素は検出されたと解釈した．

4. 有機クロラミンの生成の有無

モノクロラミンの測定において，有機クロラミンの影響を受ける場合がある DPD/FAS 滴定法と，影響を受けないサリチル酸法の比較を行ったところ，両測定法による測定結果はほぼ一致し，浴槽中に有機クロラミンが生成されていないことが確認された（表 3）．このことは，有機クロラミンの影響を受けないインドフェノール法による測定結果との照合からも確認された（表 2B）．

5. 試料輸送について

原則，塩素濃度は現場で測定すべきであるが，モノクロラミンは遊離塩素に比べて安定で，冷蔵輸送でも測定は可能であった．モデル循環式浴槽の現場で測定した DPD 吸光度法による全塩素濃度（モノクロラミン消毒ではモノクロラミン濃度と見なす）の値は，輸送後に実験室で測定した DPD/FAS 滴定法，あるいはサリチル酸法によるモノクロラミン濃度とほぼ一致した（表 3）．冷蔵で 2 晩経過したサンプルにおいても，採水時に現場で測定した全塩素濃度（DPD 吸光度法）あるいはモノクロラミン濃度（インドフェノール法）は，実験室で行った DPD/FAS 滴定法あるいはサリチル酸法によるモノクロラミン濃度とほぼ一致した．

Ⅳ．結論

モノクロラミンの消毒効果はレジオネラ対策に効果が望めるものと期待されたことから，モデル循環式浴槽で実際に管理を試みた結果，2 週間レジオネラ属菌を抑制することができた．1 日 1 回の塩素添加でモノクロラミン濃度を維持することが可能であった．モノクロラミン濃度測定には，DPD 吸光度法（全塩素）を使用することが可能であった．ジクロラミン，トリクロラミン，有機クロラミンの生成はほとんど無視できた．モノクロラミン消毒は，アルカリ性の浴槽水において，遊離塩素消毒を代替する方法となると期待された．モノクロラミン消毒の自動化等整備を進め，浴槽施設への導入・普及を目指したい．

Ⅴ．謝辞

本研究は平成 19 ～ 21 年度厚生労働科学研究費補助金健康安全・危機管理対策総合研究事業「公衆浴場におけるレジオネラの消毒方法の研究」（研究代表者：遠藤卓郎．H19- 健危 - 一般 -015）の支援を受けて行った．また，本研究の塩素濃度測定に際して沖縄県企業局の福井克人氏の助力を得た．ここに謝意を表します．

引用文献

1） 岡田美香，河野喜美子，倉文明，前川純子，渡辺治雄，八木田健司，他．循環式入浴施設における本邦最大のレジオネラ症集団感染事例 I．発症状況と環境調査．感染症学雑誌 2005；79：365-74.
2） Kuroki T, Ishihara T, Ito K, Kura F. Bathwater-associated cases of legionellosis in Japan, with a special focus on Legionella concentrations in water. Jpn J Infect Dis. 2009; 62（3）:201-5.
3） 村上光一，長野英俊，野田多美枝，濱崎光宏，堀川和美，石黒靖尚，他．浴場施設でのレジオネラ属菌と宿主アメーバの関連，およびレジオネラ属菌を塩素消毒により制御する場合の問題点．防菌防黴 2008; 36（11）:749-56.
4） White GC. Handbook of chlorination and alternative disinfectants. 4th edition. New York: J. Wiley; 1998.
5） Seidel CJ, McGuire MJ, Summers RS, Via S. Have utilities switched to chloramines? J Am Water Works Assoc 2005; 97:87-97.
6） Flannery B, Gelling LB, Vugia DJ, Weintraub JM, Salerno JJ, Conroy MJ, et al Reducing Legionella colonization in water systems with monochloramine. Emerg Infect Dis 2006; 12（4）:588-96.
7） 神野透人，泉山信司，香川（田中）聡子，高橋淳子，畔上二郎．モノクロラミンの皮膚一次刺激性に関する研究．厚生労働科学研究費補助金健康安全・危機管理対策総合研究事業「公衆浴場におけるレジオネラの消毒方法に関する研究」（研究代表者：遠藤卓郎．課題番号：H19- 健危 - 一般 -015）平成 20 年度分担研究報告書．2009.
8） WHO. Monochloramine in drinking-water（Background document for development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality）. Geneva: WHO; 2004.
9） Lee W, Westerhoff P. Formation of organic chloramines during water disinfection-chlorination versus chloramination. Water Res 2009;43:2233–9.
10） APHA, AWWA, WEF. Standard methods for the examination of water & wastewater. 21th edition. Washington, DC: American Public Health Association; 2005.
11） Tao H, Chen ZL, Li X, Yang YL, Li GB. Salicylate-spectrometric determination of inorganic monochloramine. Anal Chim Acta 2008;615:184–90.

12）小坂浩司．水道におけるトリクロラミンの実態および前駆物質の低減化．厚生労働科学研究費補助金地域健康危機管理研究事業「水道水異臭被害を及ぼす原因物質の同定・評価および低減化技術に関する研究」（主任研究者：西村哲治）平成 19 年度 総括・分担研究報告書．2008.
13）Kosaka K, Seki K, Kimura N, Kobayashi Y, Asami M. Determination of trichloramine in drinking water using head space gas chromatography/mass spectrometry. Water Sci Technol: Water Supply 2010;10(1):23–9.